

海水中放射性核素推定 限制浓度的初步研究

王洪升 孙培铨

(核工业部辐射防护研究所,太原) (海军司令部防护研究室,北京)

张永兴 李培泉

(中国科学院原子能研究所,北京) (中国科学院海洋研究所,青岛)

提 要

本文提出了放射性物质排入海洋后经由各种途径对人照射的评价模式。导出了描述放射性核素在海洋体系中动力学行为的微分方程组,并就平衡条件推算出放射性核素在海水中的限制浓度。关键居民组为当地渔民,取公众个人年剂量当量限值的1/3(即1.7mSv/a)作为海洋环境引起的照射限值。讨论了参数的估算和取值方法。文中还给出了用比活度法算出的限制浓度值。讨论了所给结果的适用性和安全裕量。本文的结果还与文献报道的相应结果以及露天水源的限制浓度作了比较。

发展核工业会将一定数量的放射性物质排入海洋。因此,研究放射性物质在海洋中的分布和转移规律及其对人的照射、对海洋生态系统的影响乃是保护海洋环境和正当合理地发展核工业的重要课题。其中,关于海水中放射性核素的“推定限制浓度”的研究是一个重要内容。它是评价海洋放射性污染水平的参考依据,又是控制向海洋排放放射性废物的重要指标。

关于“海水中放射性核素推定限制浓度”(以下简称为“限制浓度”)的计算,国内尚未见到正式报道。国际上发表的有关论文^[9,13,14,15,18]都只计算了食用海产品引起的内照射,而未考虑外照射途径的影响,人体代谢和剂量计算模式也都是采用国际放射防护委员会(ICRP)第二号出版物中的单隔室-关键器官模式。本文提出了计算内外照射之和的多途径转移照射模式(见图1),并对静态平衡情况(见图2)给出了计算结果。人体代谢和剂量计算模式采用国际放射防护委员会的最新成果^[10]。

一、原则与模式

推导限制浓度的基本原则是:(1)通过各种途径对公众个人的最大照射控制在预定的剂量当量限值内;(2)保证不会对海洋生态系统产生可以觉察的不利影响。

据现有资料^[4,5]来看,我们认为:当环境辐射对公众个人的照射被控制在现行的个人剂量限值(5mSv/a或0.5rem/a)以内时,似乎不会对其它生物和生态系统造成不利影响。

收稿日期: 1983年5月29日。

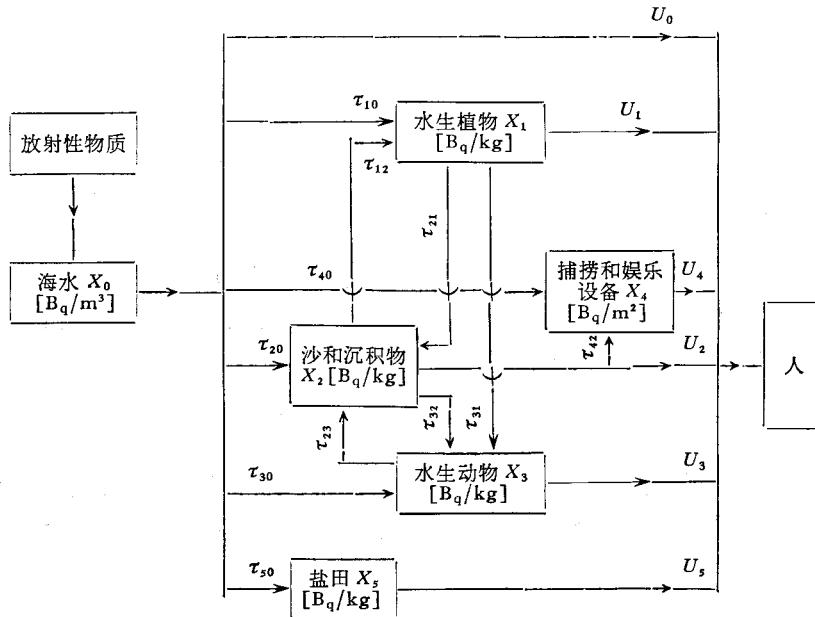


图 1 放射性物质进入海洋后的转移及照射途径(简化模式)

因此,本文将只根据对人的照射来推导和计算限制浓度。

图 1 是放射性物质在海洋体系中的转移及对人照射的简化模式。图中每个小方框称之为隔室,代表核素在海洋环境中转移的一个环节,隔室之间带箭头的连线代表转移(τ_{ij} 是 $j \rightarrow i$ 的转移)。隔室中的 X 即为模式的有关变量。

由图 1 我们可写出描述放射性核素在海洋环境中的动力学行径的微分方程组:

$$\left. \begin{aligned} \frac{dX_1}{dt} &= \tau_{10}X_0 + \tau_{12}X_2 - (\lambda_R + \tau_{21} + \tau_{31} + \tau_p)X_1 \\ \frac{dX_2}{dt} &= \tau_{20}X_0 + \tau_{21}X_1 + \tau_{23}X_3 - (\lambda_R + \tau_{12} + \tau_{32} + \tau_{42})X_2 \\ \frac{dX_3}{dt} &= \tau_{30}X_0 + \tau_{31}X_1 + \tau_{32}X_2 - (\lambda_R + \tau_{23} + \tau_a)X_3 \\ \frac{dX_4}{dt} &= \tau_{40}X_0 + \tau_{42}X_2 - (\lambda_R + \tau_c)X_4 \\ \frac{dX_5}{dt} &= \tau_{50}X_0 - (\lambda_R + \tau_b)X_5 \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

或写成

$$\frac{d\{X(t)\}}{dt} = [W(t)]\{X(t)\} + \{G(t)\} \quad (2)$$

向量 $\{X(t)\} = \begin{Bmatrix} X_1(t) \\ X_2(t) \\ \vdots \end{Bmatrix}$ 和 $\{G(t)\} = \begin{Bmatrix} \tau_{10} \\ \tau_{20} \\ \vdots \end{Bmatrix} X_0$ 是 5 阶列矩阵,

$$[W(t)] = \begin{bmatrix} -(\lambda_R + \tau_{21} + \tau_{31} + \tau_p) & \tau_{12} & 0 & 0 & 0 \\ \tau_{21} & -(\lambda_R + \tau_{12} + \tau_{32} + \tau_{42}) & \tau_{23} & 0 & 0 \\ \tau_{31} & \tau_{32} & -(\lambda_R + \tau_{23} + \tau_a) & 0 & 0 \\ 0 & \tau_{42} & 0 & -(\lambda_R + \tau_c) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -(\lambda_R + \tau_b) \end{bmatrix}$$

是一个 5×5 的方矩阵, 称为转移矩阵, 矩阵元 τ_{ij} 是由 j 隔室向 i 隔室的转移速率; λ_R 是放射性蜕变常数; $\tau_p, \tau_a, \tau_c, \tau_b$ 分别表示由于捕捞 (τ_p)、清洗 (τ_c) 和风化 (τ_b) 的损失速率。由 (2) 式求出 $\{X(t)\}$ 后, 再由

$$D = \sum_{K=0}^5 \int_0^T U_K d_K X_K(t) dt \quad (3)$$

可算出对人的总剂量当量 $D[S_V]$, 式中 U_K 是人对 K 隔室的利用参数 (见表 1); d_K 是 K 隔室对人照射的剂量转换因子; X_K 是 K 隔室的有关变量 [Bq/m^3 或 Bq/kg]; T 是计算剂量的时间间隔。

表 1 U_K 值

U_0 [h/a]	U_1 [kg/a]	U_2 [h/a]	U_3 [kg/a]	U_4 [h/a]	U_5 [h/a]	U_6 [kg/a]
200	20	360	180	4000	400	3

二、静态解

关于转移矩阵 $[W(t)]$ 的实验数据目前还很少, 而且文献发表的基本上是平衡条件下的单向转移系数, 一般称为浓集因子。从估算对人的照射来看, 这种静态解是偏安全的上限 (当要研究某个生态环节的效应时, 就需要研究该生物在整个生存期间所受剂量的变化, 因此, 必须求 (1) 和 (3) 式的解)。

图 2 是图 1 的简化——平衡态特例。图中 $f_{ij} \equiv X_i/X_j$, 有时称为 i 隔室对 j 隔室的浓集因子 (注意 $f_{ij} \neq \tau_{ij}$), 这时公众个人受到的内、外照射总剂量 D 为

$$\begin{aligned} D &= \sum_{K=0}^5 \int_0^T U_K d_K X_K dt = T \sum_{K=0}^5 \sum_{m=1}^5 f_{Km} f_{m0} U_K d_K X_0 \\ &= U_0 d_0 X_0 + T \sum_{K=1}^5 \sum_{m=1}^5 f_{Km} f_{m0} U_K d_K X_0 \end{aligned} \quad (4)$$

令 D/T 等于预先规定的剂量率限值 LD_s , 则由 (4) 式可求出放射性核素在海水中的限制浓度 $X_L [Bq/m^3]$

$$X_L = \frac{LD_s}{\sum_K \sum_m f_{Km} f_{m0} U_K d_K} \quad (5)$$

表 2 该海区食用海产品比例

海产品	鱼类	贝类	虾类	藻类
比例	70%	15%	5%	10%

表 3 海水中放射性核素的推定限制浓度

放射性核素	转移模式				比活度法					本文推荐值 X_L [Bq/l]
	$T_{1/2}$ [d]	\bar{f}	蜕变修正	X_L [Bq/l]	X_{ne} [μg/l]	ALI [Bq/a]	DLI [μg/d]	g_2	X_L [Bq/l]	
³ H	4.5E3	1	1	5E3	1.1E8	3.0E9	2.4E8	0.1	8.1E2	5E3
⁷ Be	53	100	0.21	1E4	6E-4	2.0E9	12	1	9.1E-1	1E4
¹⁰ Be	9.86E8	100	1	6E1	6E-4	3.8E7	12	1	1.7E-2	6E1
¹⁴ C	2.1E6	1.7E3	1	1	2.8E4	8.8E7	3E8	0.1	9.8E-3	1
²² Na	9.5E2	2.1	1	5E3	1.1E7	1.6E7	4.4E6	1	3.7E2	5E3
³² P	14.3	2.6E4	0.056	2	88	2.4E7	1.4E6	1	1.3E-2	2
³⁵ S	87.1	1.3	0.344	5E3	9E5	2.9E8	8.5E5	0.1	2.8E2	5E3
³⁶ Cl	1.6E8	0.08	1	6E3	1.9E7	6.1E7	5.2E6	1	2.0E3	6E3
⁴⁰ K	4.7E11	10.1	1	1E1	3.9E5	9.9E6	3.3E6	1	1.1E1	1E1
⁴⁵ Ca	163	4.1	0.64	2E3	4.1E5	6.0E7	1.1E6	1	2E2	2E3
⁴⁶ Sc	85	1.3E3	0.34	1	30 ¹⁾	3.2E7		1		1
⁴⁴ Ti	21	1.3E3	0.083	1	1.0	9.6E6	850	1	9.6E-2	1
⁴⁸ V	16	117	0.063	5E1	1.9	2.6E7	2E3	0.1	2.2E-2	5E1
⁵¹ Cr	27.8	880	0.109	1E3	0.2	1.4E9	150	1	1.7E+1	1E3
⁵⁴ Mn	310	2.2E3	1	5	0.4	6.9E7	3.7E3	1	6.9E-2	5
⁵⁵ Fe	1073	1.1E4	1	4E-1	3.4	2.2E8	1.6E4	0.1	6.2E-2	4E-1
⁵⁹ Fe	47.1	1.1E4	0.186	1E-1	3.4	2.8E7	1.6E4	0.1	5.4E-3	1E-1
⁵⁷ Co	270	1.6E3	1	1	0.39	1.6E8	3E2	0.1	1.9E-1	1
⁵⁸ Co	70.8	1.6E3	0.28	1	0.39	5.3E7	3E2	0.1	6.3E-2	1
⁶⁰ Co	1.8E3	1.6E3	1	6E-2	0.39	7.2E6	3E2	0.1	8.5E-3	6E-2
⁶³ Ni	3.1E4	145	1	2E2	6.6	3.0E8	4E2	1	4.5	2E2
⁶⁷ Cu	2.44	900	0.0096	6E1	0.9	1.7E8	3E3	0.1	3.8E-2	6E1
⁶⁵ Zn	250	2.2E4	1	9E-3	5	1.3E7	1.3E4	0.1	4.6E-3	9E-3
⁶⁷ Ga	3.25	533	0.013	3E3	0.03	2.6E8		0.1		3E3
⁶⁸ Ge	250	5.7E3	1	5	0.06	1.7E8	1.5E3	1	6.2E-2	5
⁷³ As	76.3	333	0.3	4E2	2.6	3.0E8	1E3	1	7.1	4E2
⁷⁵ Se	127	361	0.5	1E2	0.09	1.9E7	150	1	9.5E-3	1E2
⁸² Br	1.5	2.2	0.006	4E4	6.13E4	1.1E8	7.5E3	1	9.0E3	4E4
⁸³ Rb	83	11	0.33	3E2	120	2.4E7	2.2E3	1	11.9	3E2
⁸⁶ Rb	18.6	11	0.074	7E2	120	2.0E7	2.2E3	1	9.9	7E2
⁸⁹ Sr	50.5	2.9	0.2	1E3	8.1E3	1.7E7	1.9E3	1	6.6E2	1E3
⁹⁰ Sr	1E4	2.9	1	6E1	8.1E3	1.2E6	1.9E3	1	4.7E1	6E1
⁹¹ Y	61	1.3E3	0.24	9	30 ¹⁾	1.7E7		1		9
⁹⁵ Zr	65	1.3E3	0.26	2E1	30 ¹⁾	5.5E7	4.2E3	1	3.6	2E1
⁹⁵ Nb	35	2.1E4	0.14	4	0.015	8.3E7	6.2E2	1	1.9E-2	4
⁹⁹ Mo	2.8	1E3	1	5	10	3.6E7	3E2	1	10.8	1E1
⁹⁹ Tc	2.7E7	117	1	1E2	2 ¹⁾	1.5E8		1		1E2
¹⁰³ Ru	41	670	0.16	1E2	2 ¹⁾	6.8E7		1		1E2
¹⁰⁶ Ru	365	670	1	1	2 ¹⁾	7E6		1		1
¹⁰² Rh	210	670	0.83	6		2.2E7		1		6
¹⁰³ Pd	17	670	0.067	5E2		2.2E8		1		5E2
^{110m} Ag	270	3.2E3	1	8E-1	0.28	1.7E7	70	1	6.2E-1	8E-1
¹⁰⁹ Cd	475	5.2E4	1	5E-1	0.11	1.2E7	150	1	5.6E-1	5E-1
^{113m} Cd	43	5.2E4	0.17	4E-1	0.11	1.2E7	150	1	8.0E-2	4E-1
^{114m} In	49	1E5	0.19	8	10 ¹⁾	1.0E7		1		8
¹¹⁵ In	2.2E17	1E5	1	2E-1	10 ¹⁾	1.3E6		1		2E-1

表 3 (续)

放射性核素	转移模式				比活度法					本文推荐值 X_L [B _q /l]
	$T_{1/2}$ [d]	\bar{f}	蜕变修正	X_L [B _q /l]	X_{ne} [μ _R /l]	ALI [B _q /a]	DLI [μ _R /d]	g_2	X_L [B _q /l]	
¹¹³ Sn	112	837	0.44	2E1	0.81	6.3E7	4E3	1	0.12	2E1
¹²⁴ Sb	60	3.2E3	0.24	5	0.33	2.0E7	50	1	1.2	5
¹²⁵ Sb	816	3.2E3	1	3	0.33	7.2E7	50	1	4.3	4
^{127m} Te	109	50	0.43	1E2	0.08 ¹⁾	2.4E7	600	1	2.9E-2	1E2
¹³¹ I	8.1	480	0.032	1E1	64	1.0E6	200	1	2.9E-1	1E1
¹³⁴ Cs	840	2.5E6	1	9	0.3	2.5E6	10	1	6.8E-1	9
¹³⁷ Cs	1.1E4		1	1E1	0.3	3.7E6	10	1	1.0	1E1
¹⁴⁰ Ba	12.8		0.05	2E1	2.1	1.9E7	750	1	4.8	2E1
¹⁴⁰ La	1.1E3		1	1	30 ¹⁾	2.4E7		1		1
¹⁴¹ Ce	32		0.13	2E1	30 ¹⁾	5.8E7		1		2E1
¹⁴⁴ Ce	290		1	4E-1	30 ¹⁾	7.6E6		1		2E-1
¹⁴⁷ Pm	825		1	1E1	30 ¹⁾	1.7E8		1		1E1
¹⁵¹ Sm	2.7E4		1	3E1	30 ¹⁾	5.0E8		1		3E1
¹⁵⁴ Eu	5.8E3		1	1	30 ¹⁾	2.0E7		1		1
¹⁴⁸ Gd	1.3E4		1	2E-2	30 ¹⁾	4.5E5		1		2E-2
¹⁶⁰ Tb	73.5		0.29	6	30 ¹⁾	3.0E7		1		6
¹⁶⁶ Dy	3.37		0.013	1E2	30 ¹⁾	2.3E7		1		1E2
^{166m} Ho	1.1E4		1	2	30 ¹⁾	3.3E7		1		2
¹⁶⁹ Er	9.4		0.038	1E2	30 ¹⁾	1.1E8		1		1E2
¹⁷⁰ Tm	120		0.48	3	30 ¹⁾	2.9E7		1		3
¹⁶⁹ Yb	31.8		0.127	3E1	30 ¹⁾	6.6E7		1		3E1
¹⁷⁶ Lu	8.8E12		1	1	30 ¹⁾	2.7E7		1		1
¹⁸¹ Hf	46		0.18	1E1	30 ¹⁾	4.2E7		1		1E1
¹⁸² Ta	112		0.45	4E1	3.1 ¹⁾	3.1E7		1		4E1
¹⁸¹ W	140	30	0.55	2E3	0.05 ¹⁾	6E8		1		2E3
¹⁸⁵ W	74	30	0.29	5E2	0.05 ¹⁾	7.9E7		1		5E2
¹⁹⁴ Os	740		1	3		1.6E7		1		3
^{192m} Ir	171		0.68	1E1		2.3E7		1		1E1
^{193m} Pt	4.3		0.017	7E1		9.5E7		1		7E1
¹⁹⁸ Au	2.7		0.011	3E3	0.011	3.2E7		1		3E3
²⁰³ Hg	47.9		0.19	8	0.15	1.9E7	15	1	1.7	8
²⁰⁴ Tl	989	8E4	1	1E-1		5.8E7	1.5	1		1E-1
²¹⁰ Pb	7.1E3	100	1	3E-2	0.03	2.3E4	4E2	1	1.6E-5	3E-2
^{210m} Bi	5.0	20	0.02	5E2	0.2	1.6E6	20	1	1.4E-1	5E2
²¹⁰ Po	138.4	440	0.55	7E-2		1.1E5	1E-1	1		7E-2
²²⁶ Ra	5.9E5	65	1	1E-1	1E-7	7.4E4	2.3E-6	1	3.0E-2	1E-1
²²⁷ Ac	7.7E3	164	1	6E-3		7.5E3		1		6E-3
²³² Th	5.1E12	167	1	2E-2	30 ¹⁾	2.6E4	3	1	2.3	2E-2
²³¹ Pa	8.9E6	164	1	7E-3	2E-10	6.9E3		1		7E-3
²³⁸ U	1.6E12	173	1	4E-1	3.3	5.0E5	1.9	0.1	7.9	4E-1
²³⁶ Np	4.2E7	164	1	1E-2		1.3E4		1		1E-2
²³⁹ Pu	8.94E6	164	1	2E-2		2.4E4		1		2E-2
²⁴¹ Am	1576	164	1	4E-2		4.5E4		1		4E-2
²⁴² Cm	162.8	164	1	2		2.2E6		1		2

注 1) 取自文献 [15], 其余的 X_{ne} 取自文献 [2]。

下面我们逐项讨论(5)式中各参数的估算和取值。

1. 取 $LD_s = \frac{1}{3} LD$ 。这里 LD 是对公众个人规定的年剂量当量限值(除天然本底和医疗照射之外)。ICRP 和各核工业国都规定公众个人全身有效剂量当量限值为 $5mSv/a$ (或 $0.5rem/a$)。式中的 $1/3$ 是考虑到对人的照射除海洋圈外还有陆地圈和大气圈,故分配给海洋圈 $1/3$,即取 $LD_s = 1.7mSv/a$ (或 $170rem/a$)。

2. 关键居民组是当地渔民。表 1 中列出他们对海洋环境的利用情况 (U_k 值)。

3. 关于 f_{ii} 的选取: f_{10} 和 f_{30} 是海洋生物浓集因子,取自文献 [6—11, 15, 16] 中最高值的平均值。 f_{20} 是泥沙中的浓度与水中浓度之比,按均匀沉积在 $2.5cm$ 厚的泥沙中来估计, $f_{20} = 1.7W [cm^3/g]^{[13]}$, 此处 W 是岸边几何形状修正因子,这里取 $W = 1.0$ 。 f_{40} 按 $1cm^3$ 的水中放射性均匀转移至 $1cm^2$ 表面上来估计,即 $f_{40} = 1 \times 10^{-2} [m]$ 。 f_{50} 是海水盐度的倒数(盐度按 35% 计)。 f_{42} 按 $1cm^3$ 沉积物中的放射性全部转移至 $10cm^2$ 表面上来估计(泥沙密度 $\rho \approx 2g/cm^3$)。据调查,该海区食用海产品分为 4 类(见表 2),所以计算时,令

$$f_{10}U_1 + f_{30}U_3 = \bar{f}\bar{U},$$

这里 $\bar{U} = \sum U$ 是海产品总消费量 ($200kg/a$), $\bar{f} = (f_{10}U_1 + f_{30}U_3)/(U_1 + U_3)$, \bar{f} 称为海产品加权平均的浓集因子,算得的 \bar{f} 值列于表 3。

4. 关于剂量转换因子 d_k 的估计公式和取值。

(1) d_0 取为无限大水体浸没照射下的剂量转换因子。对于 β 放射性核素,由 Loevinger 公式^[14]积分得

$$d_{0\beta} = W_i \dot{D}_b / X_0 = 2.89 \times 10^{-8} \bar{E}_\beta \alpha \left\{ C^2 \left[3 - \exp\left(1 - \frac{\nu b}{C}\right) - \frac{\nu b}{C} \left(2 + \ln \frac{C}{\nu b}\right) \right] + \exp(1 - \nu b) \right\} [(S_v/h)(B_q/cm^2)^{-1}] \quad (6)$$

式中, W_i 为受照组织的相对危险度权重因子,取为 0.1 ; \dot{D}_b 是深度 b 处的吸收剂量率; \bar{E}_β 是 β 粒子的平均能量 [MeV], $\bar{E}_\beta \approx \frac{1}{3} E_{\max}$, E_{\max} 是 β 射线的最大能量 [MeV]; C 是与 $E_{\beta\max}$ 有关的参数

$$C = 2 \quad 0.17MeV < E_{\max} < 0.5MeV$$

$$C = 1.5 \quad 0.5MeV \leq E_{\max} < 1.5MeV$$

$$C = 1 \quad 1.5MeV \leq E_{\max} < 3MeV$$

α 是归一化常数, $\alpha = [3C^2 - (C^2 - 1)e]^{-1}$; ν 是组织的表观吸收系数 [cm^2/g],

$$\nu = 37.2(E_{\max} - 0.036)^{-1.37}。$$

计算时取 $b = 7mg/cm^2$ 为皮肤表皮基底层的厚度。对于 γ 辐射,则有

$$d_{0\gamma} = \gamma \dot{D}_\infty / X_0 = 5.77 \times 10^{-7} \bar{E}_\gamma [(S_v/h)(B_q/cm^2)^{-1}] \quad (7)$$

式中, $\gamma \dot{D}_\infty$ 为无穷大介质中的剂量率 (S_v/h); \bar{E}_γ 为每次蜕变放出的 γ 射线总能量 [MeV]; $\bar{E}_\gamma = \sum P_i E_i$, P_i 是分支比。

$$(2) \quad d_1 = d_3 = d'_5 = g_1 H_{50} [S_v/B_q] \quad (8)$$

式中, H_{50} 是食入每单位活度的放射性物质造成的有效待积剂量当量 [S_v], 此值取自 ICRP pub 30^[10] 中的数据, g_1 是由于公众个人与参考人的代谢差异引起的修正。已知

对于 ^{239}Pu , $g = \frac{1}{0.12} = 8.5^{[17]}$, 为偏安全计, 对其它核素亦取 $g = 8.5$ 。

(3) 取 $d_{2\beta} = d_{0\beta}$ (因为 2.5cm 厚的泥沙可以近似视为 ∞ 厚); 对 γ 取为无穷大平面源的照射, 即取

$$d_{2\gamma} = 1.65 \times 10^{-10} (\mu en/\rho)_{\text{组织}} \bar{E}_{\gamma} E_i(\mu l) \quad [(S_V/h)(\text{Bq/kg})^{-1}] \quad (9)$$

式中, $(\mu en/\rho)_{\text{组织}}$ 是组织的质量能量吸收系数 $[\text{m}^2/\text{kg}]$,

$$E_i(x) \equiv \int_x^{\infty} \frac{e^{-t}}{t} dt \quad (t > 0);$$

μ 是 γ 射线在空气中的线衰减系数 $[\text{m}^{-1}]$, l 取为人体生殖腺平均高度, $l = 1[\text{m}]$ 。

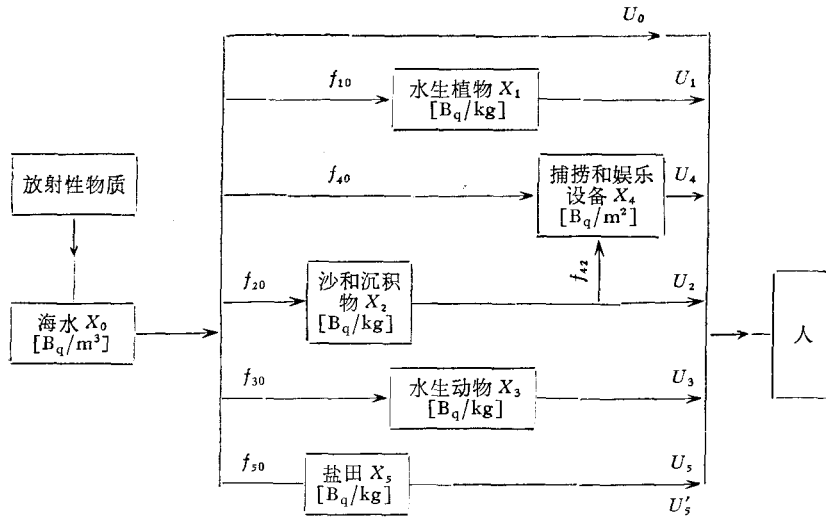


图2 放射性物质进入海洋后对人的照射途径(平衡态模式)

(4) $d_{4\beta}$ 近似用平面源公式计算, 即

$$d_{4\beta} = 2.89 \times 10^{-8} \bar{E}_{\beta} \alpha \left\{ C \left[\left(1 + \ln \frac{C}{bv} \right) - \exp \left(1 - \frac{bv}{C} \right) \right] + \exp(1 - bv) \right\} \quad [(S_V/h)(\text{Bq/m}^2)^{-1}] \quad (10)$$

取 $b = 20\text{mg}/\text{cm}^2$ 作为手和脚的表皮角质层厚度, 其它符号意义同前。

$$d_{4\gamma} = 4.39 \times 10^{-8} (\mu en/\rho)_{\text{组织}} \bar{E}_{\gamma} \cdot E_i(\mu l) \quad [(S_V/h)(\text{Bq/m}^2)^{-1}] \quad (11)$$

此时取 $l = 0.5[\text{m}]$, 其它符号同前。

(5) $d_{5\beta} = d_{0\beta}$, 但取 $b = 20\text{mg}/\text{cm}^2$ 作为手和脚的表皮角质层厚度。

取 $d_{5\gamma} = d_{2\gamma}$, $d'_5 = d_{10}$

由图2模式和(5)–(11)式算得的 X_L 值列于表3。由于文献中给出的浓集因子是按稳定元素求得的, 当用于放射性核素时应校正其蜕变效应。此时设海洋生物生长期为1年以上。表3中所列的 X_L 值已进行了蜕变校正。

三、比活度法

分析与计算表明, 由图2所示模式算出的 X_L 值, 除少数浓集因子 \bar{f} 小的核素外, 基本

上是由食入海产品引起的照射决定的。因此,也可以只计算食用海产品引起的内照射并附加一条浸没照射剂量率不高于 $0.2[\mu\text{Gy}/\text{h}]$ 的限制,这样确定出来的 X_{LD} 值也是足够安全和适用的。

由于任何化学和生物化学过程都只涉及到原子外层价电子运动状态的改变,故可以认为放射性核素的化学、生化行为与其稳定同位素的相同(很轻的核素稍有差异,如 ^1H 与 ^3H)。现在我们研究比活度 A 在食物链中的变化规律。

令 N 为某元素的原子数(脚注 r 指放射性同位素, n 指稳定同位素, b 表示生物体, e 表示海水); B 为生物质量 [g]; R 表示生物吸收某元素的速率 [原子/秒]; F 为生物体内该元素所占质量百分率; λ_b 表示生物代谢常数 [s^{-1}]; λ_R 表示放射性蜕变常数 [s^{-1}]。

设某生物生活在海水中,海水的比活度 A_s 不变,生物体内各种元素成份不变,则有:
对生物体

$$N_{rb} + N_{nb} = BFK \quad (12)$$

对海水

$$N_{rc}(N_{rc} + N_{nc})^{-1} = A_s \quad (13)$$

和

$$N_{nc}(N_{rc} + N_{nc})^{-1} = (1 - A_s) \quad (14)$$

生物体的代谢为

$$\frac{dN_{rb}}{dt} = RA_s - (\lambda_R + \lambda_b)N_{rb} \quad (15)$$

$$\frac{dN_{nb}}{dt} = R(1 - A_s) - \lambda_b N_{nb} \quad (16)$$

而

$$R = \lambda_R N_{rb} + \lambda_b BFK + FK \frac{dB}{dt} \quad (17)$$

式中, K 是该元素每克的原子数。由 (15)–(17) 式可知,若初始 $N_{rb0} = 0$, 且 $B = B_0 e^{at}$, (式中 a 为生长常数 [s^{-1}]) 则得

$$A_b/A_s = \frac{(\lambda_b + a)}{[(1 - A_s)\lambda + (\lambda_b + a)]} \{1 - e^{-[(1 - A_s)\lambda + \lambda_b + a]t}\} \quad (18)$$

若初始 $N_{rb0}/N_{nb0} = A_s$,

$$\text{则} \quad A_b/A_s = \frac{1}{\lambda_R + \lambda_b + a} [\lambda_R e^{-(\lambda_R + \lambda_b + a)t} + \lambda_b + a] \quad (19)$$

由于比活度 $A_s \ll 1$, $\therefore 1 - A_s \approx 1$, 且当生物系统处于平衡状态时(生长期过后, $t \rightarrow \infty$, $a = 0$) 则

$$A_b/A_s \rightarrow \frac{\lambda_b}{\lambda_R + \lambda_b} = \frac{T_R}{T_R + T_b} \quad (20)$$

即沿食物链转移过程中比活度将递减。显然,上述推导适用于食物链中的任何两个相邻环节。由此可推知:若海水中的比活度为 A_0 , 海洋食物链中较高层(第 n 链)生物的比活度为 A_n , 则有

$$A_n/A_0 = \prod_{i=1}^n T_i (T_i + T_{bi})^{-1} \quad (21)$$

由(21)式可知,若令 $A_{\text{食入}}/A_{\text{海水}} = 1$, 显然,是一种偏安全的估算方法,不受海域、膳食习性的限制。由此得

$$X_L = g_1 g_2 \frac{(ALI)_w}{365(DLI)_n} \cdot \frac{LD_5}{MPD} X_{nc} \quad [\text{Bq}/\text{m}^3] \quad (22)$$

式中, X_{nc} 是海水中稳定元素的浓度 $[\text{mg}/\text{m}^3]$, 其值取自文献[2, 15](所选值列于表 3); $(DLI)_n$ 是参考人平均每日摄入某元素的量 $[\text{mg}/\text{d}]$, 其值取自文献[3, 10](所取值亦列于表 3); $(ALI)_w$ 是职业人员的食入年摄入量限值 $[\text{Bq}/\text{a}]$, MPD 是职业人员的年剂量当量限值 $(50\text{mSv}/\text{a})$, g_2 是考虑到某些放射性核素呈络合物状态排入海中,而海水中天然稳定元素只有处于同样状态的那一部分才能起同位素稀释作用,故取 $g_2 = 0.1$ 。对于非络合物状态 $g_2 = 1$ 。其它参数同前所述。

由(22)式及浸没照射剂量率不高于 $0.2\mu\text{Gy}/\text{h}$ 的外照射限制算出的 X_L 列在表 3。

四、讨 论

1. 表 4 中比较了文献发表的相应标准,同时还列出我国露天水源的限制浓度^[1]。由表 4 可见,同一种放射性核素文献发表的限制浓度可相差 1—2 个量级。这反映出所用方法和参数的差异。我们计算出的结果稍偏严,这是由于我们考虑了内外照射的总效应和公众个人吸收代谢与参考人的差别。值得指出的是,露天水源的限制浓度的计算原则与海水的不同,所以它们的差别很大, $X_{L\text{海}}/X_{L\text{海}}$ 从 $2 \cdot 10^{-2}$ 变到 $4 \cdot 10^4$, 波动 6 个量级,显然不能用露天水源的限制浓度来代替海水的。

2. 本文给出的放射性核素在海水中的限制浓度是按每种核素造成的有效剂量当量率不大于 $1.7[\text{mSv}/\text{a}]$ 来推算的。转移途径模式中的环境介质利用参数是对当地渔民(关键居民组)的,而且取的转移系数都偏大,所以对于一般个人这种方法算出的结果至少有 10 倍以上的安全因子。比活度法给出的结果,适用于全部食品都取自海产品的人组,对于一般人至少约有 10 倍以上的安全因子。因此,执行本标准,普通公众个人的最大剂量大约在 $0.2\text{mSv}/\text{a}$ 以下。

3. 对于混合核素,应该按 $\sum(X_i/X_{Li}) \leq 1$ 来评价,此处 X_i 是混合核素中第 i 种核素的浓度; X_{Li} 是该核素的海水中限制浓度。混合核素的平均限制浓度 \bar{X}_L 为

$$\bar{X}_L = \left[\sum_i (f_i/X_{Li}) \right]^{-1} \quad (23)$$

其中, f_i 是第 i 种核素活度所占的份额。

4. 本文给出的限制浓度是海水浓度的容许上限,是供控制和评价用的,但并不是特准限值。有关部门可以根据附近海域的潮汐、海流、地形、海产品等情况以及远景发展规划来制定更严的特准限值。

5. 为了合理地控制向海区排放放射性废水,应该首先选几个可排放的地点进行示踪试验(例如漂浮瓶试验,示踪剂实验等),避开岸边沉积回流区,按海流的稀释交换能力确定出排放控制水平,即按

$$Q = M \bar{Y} \bar{X}_L \quad (24)$$

表 4 海水中放射性核素推定限制浓度的比较 [$B_q/1$]

核 素	NAS-NRC Pub.658	NAS-NRC Pub.655	IAEA 沿 岸 海 区	日本东京公共 卫生学院	NAS-NRC Pub.985	本文推荐值	露天水源 限制浓度
^3H					6E3	5E3	1E4
^7Be						1E4	2E4
^{10}Be						6E1	
^{14}C					3E-1	1	4E3
^{22}Na					4E3	5E3	1E2
^{32}P		2			1E-1	2	2E2
^{35}S		4E5			3E5	5E3	3E2
^{36}Cl					5E4	6E3	3E2
^{40}K						1E1	
^{45}Ca		2E4			4E3	2E3	1E2
^{46}Sc					2E1	1	4E2
^{44}Ti						1	
^{48}V					1	5E1	3E2
^{51}Cr	7E1		7E2	2E2	7	1E3	2E4
^{54}Mn					3E-1	5	1E3
^{55}Fe	3		4E1	7-7E1	1	4E-1	7E3
^{59}Fe	2E-1	2E2	3	5E-1-5	1E-1	1E-1	7E2
^{57}Co					2	1	4E3
^{58}Co					4E-1	1	1E3
^{60}Co	1E-1	7E2	1	5-9E2	2E-1	6E-2	4E2
^{63}Ni						2E2	3E2
^{67}Cu	2	6E3	1E1		2E-1	6E1	
^{65}Zn	7E-1	4E3	4	7-1E1	4E-1	9E-3	4E2
^{67}Ga						3E3	
^{68}Ge						5	
^{73}As						4E2	4E3
^{75}Se						1E2	1E3
^{82}Br						4E4	4E2
^{83}Rb						3E2	
^{86}Rb					4E1	7E2	3E2

表 4 (续)

核素	NAS-NRC pub. 658	NAS-NRC pub. 655	IAEA 沿海岸区	日本东京公共 卫生学院	NAS-NRC pub. 985	本文推荐值	露天水源 限制浓度
^{89}Sr					3E5	1E3	1E2
^{90}Sr	2E-1	3E1			1E3	6E1	3
^{91}Y					3E3	9	3E2
^{92}Zr	1				2E1	2E1	7E2
^{93}Nb	2E1				2E2	4	1E3
^{99}Mo						1E1	4E2
^{99}Tc					2	1E2	2E3
^{103}Ru					6E-1	1E2	7E2
^{106}Ru	4E-1				7E-2	1	1E2
^{102}Rh						6	
^{103}Pd						5E2	3E3
$^{110\text{m}}\text{Ag}$						8E-1	3E2
^{109}Cd					2E-1	5E-1	2E3
$^{115\text{m}}\text{Cd}$					6E-1	4E-1	3E2
$^{114\text{m}}\text{In}$					2E-2	8	2E2
^{115}In						2E-1	1E3
^{113}Sn					2E1	2E1	7E2
^{124}Sb						5	1E3
^{125}Sb					1	4	3E2
^{127}Te					1E-3	1E2	3E2
^{131}I	1	1E2			6E1	1E1	2E1
^{134}Cs						9	4E1
^{137}Cs	2E1	1E4			6E3	1E1	4E1
^{140}Ba					2E1	2E1	3E2
^{140}La					7	1	3E2
^{141}Ce					3E1	2E1	1E3
^{144}Ce	4E-2				4	2E-1	1E2
^{147}Pm					7E1	1E1	2E3
^{151}Sm					2E2	3E1	4E3
^{154}Eu					7	1	2E2

表 4(续)

核 素	NAS-NRC pub.658	NAS-NRC pub.655	IAEA 沿岸海区	日本东京公共 卫生学院	NAS-NRC pub.985	本文推荐值	露天水源 限制浓度
¹⁴⁸ Gd						2E-2	
¹⁶⁰ Tb						6	4E2
¹⁶⁶ Dy						1E2	4E2
^{166m} Ho						2	1E3
¹⁶⁹ Er						1E2	
¹⁷⁰ Tm						3	4E2
¹⁶⁹ Yb						3E1	
¹⁷⁶ Lu						1	
¹⁸¹ Hf						1E1	7E2
¹⁸² Ta	2		1E1		2E-1	4E1	4E2
¹⁸¹ W					2	2E3	1E3
¹⁸⁵ W					4E-1	5E2	4E3
¹⁹⁴ Os						3	
^{192m} Ir						1E1	
^{193m} Pt						7E1	1E4
¹⁹⁸ Au						3E3	4E2
²⁰³ Hg						8	2E2
²⁰⁴ Tl						1E-1	7E2
²¹⁰ Pb						3E-2	4E-1
^{210m} Bi					2E-1	5E2	4E2
²¹⁰ Po					2E-2	7E-2	7
²²⁶ Ra					4E-1	1E-1	1
²²⁷ Ac						6E-3	2E1
²³² Th					7	2E-2	4E-1
²³¹ Pa					4E-2	7E-3	1E1
²³⁸ U					1E-1	4E-1	8
²³⁶ Np						1E-2	3E1
²³⁹ Pu					8E-2	2E-2	4E1
²⁴¹ Am					1E-1	4E-2	4E1
²⁴² Cm					7	2	3E2

来计算容许的废水排放量 Q [Bq/s] (加上对浓度的附加限制), \bar{V} 是海水平均稀释因子 [m^3/s], M 是由推定限值到特准限值的因子, 一般取为百分之几。

6. 本文是对黄、渤海区计算的(参见 X_{nc} 和 U 值的选取), 但由于所选参数带有足够的安全系数, 所以对于我国沿海大陆架海区, 一般也都适用。

参 考 文 献

- [1] 全国环境保护会议筹备小组办公室, 1974。放射防护规定 GBJ8-74。原子能出版社, 5—13 页。
- [2] 陈容文编著, 1979。海洋学概论。澳门科技丛书出版社, 232 页。
- [3] 施罗德, H. A., 1979。微量元素和人(陈荣三等译)。科学出版社, 28 页。
- [4] 国际原子能机构, 1982。水生生物及水生生态系统的辐射效应(宋妙发等译)。国际原子能机构技术报告丛书第 172 号, 原子能出版社, 1—2 页。
- [5] 国际放射防护委员会, 1982。环境辐射监测和剂量评价(张永兴等译)。国际放射防护委员会第 7 和第 29 号出版物, 原子能出版社, 38—42 页。
- [6] 霍恩, R. A., 1976。海洋化学(厦门大学海洋化学教研室译)。科学出版社, 179—182 页。
- [7] 江上信雄, 1973。放射能与鱼类。恒星社厚生阁版, 241 页。
- [8] Eisenbud, M., 1973。Environmental Radioactivity. Academic Press, Inc., pp. 154—155.
- [9] IAEA, 1961。Radioactive Waste Disposal into the Sea. IAEA Safety Series No. 5, IAEA Kaerntnerring, Vienna I. Austria. pp. 133—158.
- [10] ICRP, 1979。Limits for Intake of Radionuclides by Workers. Pergamon Press, Oxford, pp. 1—555.
- [11] Killough, G. G. and L. R. McKay, 1976。A Methodology for Calculating Radiation Doses from Radioactivity Released to the Environment. ORNL Oak Ridge National Laboratory, 4—118.
- [12] Loevinger, R., 1956。The Dosimetry of beta sources in tissue, the point source function. *Radio-logy* 66(1): 55—62.
- [13] US NAS-NRC, 1959。Radioactive Waste Disposal into Atlantic and Gulf Coastal Waters. NAS-NRC Pub. 655, NAS-NRC Washington, pp. 26—27.
- [14] US NAS-NRC, 1959。Radioactive Waste Disposal from Nuclear power Ship. NAS-NRC Pub. 658, NAS-NRC Washington, pp. 13—26.
- [15] US NAS-NRC, 1962。Disposal of Low Level Radioactive Waste into Pacific Coastal waters. NAS-NRC Pub. 985, NAS-NRC Washington, pp. 56—66.
- [16] US Nuclear Regulatory Commission, 1976。Calculation of Annual Doses to man from Routine Releases of Reactor Effluents for the purpose of Evaluating Compliance With 10 CFR Part 50, Appendix I. The Office of the Federal Register National Archives and Records Service General Services Administration. Regulatory Guide 1. 109—131.
- [17] Thompson, R. C., 1980。Radiation protection Vol. 2. Proceedings of the 5th Congress of the International Radiation Protection Society. Pergamon Press, pp. 657—660.
- [18] Yamagata, N., 1965。Evaluation of marine contamination with radioisotopes of long half lives. *Health Physics* 11: 1005.

PRELIMINARY STUDY ON THE DERIVED LIMIT CONCENTRATION OF RADIONUCLIDES IN SEAWATER

Wang Hongsheng

(Institute of Radiation Protection, MNI, Taiyuan)

Sun Peiquan

(Antichemical Department of Navy Command, Beijing)

Zhang Yongxing

(Institute of Atomic Energy, Academia Sinica, Beijing)

and

Li Peiquan

(Institute of Oceanology, Academia Sinica, Qingdao)

ABSTRACT

In this article the assessment model for the dose equivalent of the radioactive materials disposed into the sea and received by public individual via various routes is presented. The differential equation group describing the kinematic behavior of radionuclides in the sea environment is derived. The Derived Limit Concentration (DLC) of radionuclides in sea water is calculated for the equilibrium condition. The local fisherman serves as the critical group, a third of yearly dose equivalent limit for these individuals (i.e. 1.7 mSv/a) is taken as dose limit in ocean environment contaminated with radioactive materials. The parameter evaluating approach and its significance is also discussed. The DLC calculated by specific activity approach and the applicability of resultant values and its safety are given. Finally, the calculated DLC is compared with the maximum permissible concentration (MPC) as published in literatures for sea water and also with the limit concentration of radionuclides in fresh water.